

## 放射性廃棄物地層処分場設計のための高精度位相シフト干渉計を利用したスメクタイトの溶解速度研究

著者	上田 真三
号	56
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	理第1252号
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/56840">http://hdl.handle.net/10097/56840</a>

氏名・(本籍)

うえ た しん ぞう  
上 田 真 三

学位の種類

博士(理学)

学位記番号

理第1252号

学位授与年月日

平成25年3月6日

学位授与の要件

学位規則第4条第2項該当

研究科、専攻

東北大学大学院理学研究科(博士課程)地学専攻

学位論文題目

放射性廃棄物地層処分場設計のための高精度位相シフト干渉計を利用した  
スメクタイトの溶解速度研究

論文審査委員

(主査) 教授 塚本 勝 男  
教授 掛川 武  
教授 土屋 範 芳  
教授 上田 晃(富山大学)  
教授 大谷 栄 治  
教授 石渡 明

## 論文目次

- 第1章 放射性廃棄物処分におけるスメクタイトの役割
- 第2章 緩衝材中の核種移行へのスメクタイト溶解速度の影響評価
- 第3章 高精度位相シフト干渉計を用いた溶解速度実験技術の確立
- 第4章 方解石の溶解速度実験
- 第5章 スメクタイトの溶解速度実験

## 論文内容要旨

放射性廃棄物地層処分場からの核種漏洩を抑制するために設置する緩衝材の主要構成鉱物は、層状の結晶構造を持つケイ酸鉱物のスメクタイトである。スメクタイトは、高い陽イオン交換能を有し放射性核種を収着する。また、吸水膨張してゲル化し処分場の隙間を自然に埋めることで長期にわたって地下水を止水する。緩衝材の設計は、これらのスメクタイトの核種漏洩に対するバリア機能を効果的に発揮させるための設計に他ならない。

スメクタイトは化学的に安定で、室温程度の低温環境ではほとんど溶解しないと考えられてきた。しかし、微速の溶解速度であっても長期的に継続すると有意な溶解量に達し、設計通りの機能を発揮できなくなる可能性がある。この点を注意深く設計に反映するためには、現実的条件で高精度に測定されたスメクタイトの溶解速度データが不可欠である。しかしながら、従来の実験方法では、スメクタイトのように超微速の溶解速度を精度よく測定することはできなかった。そこで、本研究において次の各項目を実施した。

- 1) 超微速のスメクタイト溶解速度を高精度に測定できる新たな実験技術の確立

2) 試料微粉碎や溶解攪拌等の加速試験を適用しない現実的な条件でのスメクタイト溶解速度実験

3) 実験結果を基にした処分場設計施工への提案

新たな溶解速度実験技術として、位相シフト干渉計を利用した溶解実験技術を確立した。スメクタイトの溶解速度実験に先立ち、装置性能確認のために実施したカルサイトの溶解速度実験では、本溶解速度実験技術の性能が、従来の溶解速度実験技術より数百倍の高精度化と高速化を実現していることを確認した。

スメクタイトの溶解速度実験では最小  $1.3 \times 10^{-4}$  nm/s ( $4 \mu\text{m}/\text{y}$ ) という微速の溶解速度を初めて In-situ で測定した。実験結果は、一般的な鉱物溶解速度式の主要パラメータである溶解 pH と溶解反応の未飽和度や、位相シフト干渉計でなければ測定できない試料の凹凸や高さなどの観点で整理し考察した。その結果、たとえばスメクタイトの溶解速度は試料の高さに依存することを定量的に示すことが可能となり、これを踏まえてスメクタイトの結晶層間での溶解が溶解速度に与える効果を具体的に議論した。また、これらの実験結果を基に、地層処分や福島原発事故由来の放射性廃棄物処分について検討し、スメクタイトを有効利用するための提案を行った。

以上の実験成果及びそれに基づく検討や提案は全て、位相シフト干渉計を利用して難溶解鉱物の溶解速度を In-situ 測定できる実験システムを構築するという、世界的にも例をみない技術を確立したことにより実現できたものである。

## 論文審査の結果の要旨

放射性廃棄物地層処分場で、核種漏洩抑制のために使用される緩衝材を適切に選定し処分場として設計するためには、緩衝剤として使われるスメクタイト結晶の地下水による溶解速度の研究が必要である。この溶解速度の測定は、従来、結晶を溶かした溶液を分析することで得られているが、その溶解速度は、研究者により数桁も異なっている。また、この溶液分析法は、溶解速度を小さく見積もる可能性のある加速試験であるため、従来の測定値は正当性にも懸念があった。

そこで、本研究では、まず、超微速のスメクタイト溶解速度を、現実に即した条件で測定する新しい方法の確立を図った。そのために、溶液の濃度変化を測るのではなく、結晶の溶解を直接測る、『位相シフト干渉計を利用した結晶溶解速度測定法』を開発した。新たに構築した装置の性能を確認するために、カルサイトの溶解速度測定を実施し、これまで数日かかっていた測定が、わずか20分の測定で終了すること、試料表面の微小な凹凸が溶解速度に大きな影響を与えていること、などを明らかにするなど、溶解速度測定の高精度化と迅速化を実現できたことを確認した。

次いで、この手法を用いて、スメクタイト溶解速度実験を実施した。その結果、 $1.3 \times 10^{-4}$  nm/s ( $\sim 4$   $\mu$ m/年)という超微速の溶解速度を、世界で初めて「その場測定」した。それにより、難溶性鉱物の溶解速度への一般的な影響要因である「反応溶液のpH」や「溶解反応の未飽和度」、「結晶表面のナノレベルの凹凸」「試料厚さと溶解速度の相関性」の関係を得ることができた。

一般の結晶は結晶の外側から溶解すると考えていたが、層状構造をもつスメクタイト結晶では、吸水膨張し結晶の層間距離が増加するため、内部からの溶解を加味しなければならないことを初めて明らかにし、これを反映したモデルを提案した。従来の溶液を分析する方法では、結晶内部（層間）の溶解量は測定できないがために、何桁も小さな溶解速度が見積もられると考えた。実際、本研究で新しく測定したスメクタイト溶解速度は、従来の値より2、3桁速い。

この結果を踏まえて、放射性廃棄物の地層処分場や福島原発事故由来の廃棄物処分場で、構成材として多用されるスメクタイトを有効利用するために、設計の考え方や、今後の研究開発テーマに関する提案を行った。

本研究は自立して研究活動を行うに必要な高度の研究能力と学識を有することを示している。したがって、上田真三提出の博士論文は博士（理学）の学位論文として合格と認める。